

(19)



JAPANESE PATENT OFFICE

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: **09323039 A**

(43) Date of publication of application: **16.12.97**

(51) Int. Cl

**B01J 23/42  
B01D 53/94  
B01J 23/34  
B01J 23/44  
B01J 23/46  
B01J 23/46  
B01J 23/46  
B01J 23/72**

(21) Application number: **08143997**

(22) Date of filing: **06.06.96**

(71) Applicant: **SEKIYU SANGYO KASSEIKA  
CENTER SAKAI CHEM IND CO  
LTD**

(72) Inventor: **NAKATSUJI TADAO  
YASUKAWA RITSU  
TABATA KEIICHI**

**(54) METHOD FOR CATALYTICALLY REDUCING  
NITROGEN OXIDE**

(57) Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a method for catalytically reducing the NO<sub>x</sub> in an exhaust gas stably and efficiently with hydrocarbons as a reducing agent even in coexistence of oxygen, SO<sub>x</sub> and moisture at a low temp. without using a large amt. of the reducing agent.

**SOLUTION:** The NO<sub>x</sub> contained in an exhaust gas is

catalytically reduced in the presence of a catalyst with hydrocarbons as a reducing agent. In this case, the exhaust gas is brought into contact with an NO<sub>x</sub> oxidizing catalyst to oxidize the nitrogen monoxide (NO) contained in the exhaust gas to nitrogen dioxide (NO<sub>2</sub>) in the first stage. Hydrocarbons are added to such an exgaust gas, and the exhaust gas is brought into contact with an NO<sub>x</sub> reducing catalyst selected from metallic rhodium and rhodium oxide to reduce the NO<sub>x</sub> to nitrogen in the second stage.

COPYRIGHT: (C)1997,JPO

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平9-323039

(43)公開日 平成9年(1997)12月16日

(51)Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	府内整理番号	F I	技術表示箇所
B 01 J	23/42		B 01 J 23/42	A
B 01 D	53/94		23/34	A
B 01 J	23/34		23/44	A
	23/44		23/46	A
	23/46			301A

審査請求 未請求 請求項の数4 O.L (全6頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願平8-143997

(22)出願日 平成8年(1996)6月6日

(71)出願人 590000455

財団法人石油産業活性化センター  
東京都港区虎ノ門四丁目3番9号

(71)出願人 000174541

堺化学工業株式会社  
大阪府堺市戎之町西1丁1番23号

(72)発明者 仲辻 忠夫

大阪府堺市戎島町5丁1番地 堀化学工業  
株式会社中央研究所内

(72)発明者 安川 律

大阪府堺市戎島町5丁1番地 堀化学工業  
株式会社中央研究所内

(74)代理人 弁理士 牧野 逸郎

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 窒素酸化物の接触還元方法

(57)【要約】

【課題】炭化水素を還元剤として用いる窒素酸化物の接触還元方法であって、酸素や硫黄酸化物や水分の共存下においても、多量の還元剤を用いることなく、しかも、低温において排ガス中の窒素酸化物を安定して且つ効率よく接触還元することができる窒素酸化物の接触還元方法を提供することにある。

【解決手段】排ガスに含まれる窒素酸化物を触媒の存在下に還元剤として炭化水素を用いて接触還元する方法において、第1段階として、排ガスを窒素酸化物酸化触媒に接触させて、排ガスに含まれる一酸化窒素(NO)を二酸化窒素(NO<sub>2</sub>)に酸化し、次いで、このような排ガスに炭化水素を加え、第2段階として、この排ガスをロジウム金属及びロジウム酸化物から選ばれる窒素酸化物還元触媒に接触させて、窒素酸化物を窒素に還元することを特徴とする。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】排ガスに含まれる窒素酸化物を触媒の存在下に還元剤として炭化水素を用いて接触還元する方法において、第1段階として、排ガスを窒素酸化物酸化触媒に接触させて、排ガスに含まれる一酸化窒素(NO)を二酸化窒素(NO<sub>2</sub>)に酸化し、次いで、このような排ガスに炭化水素を加え、第2段階として、この排ガスをロジウム金属及びロジウム酸化物から選ばれる窒素酸化物還元触媒に接触させて、窒素酸化物を窒素に還元することを特徴とする窒素酸化物接の触還元方法。

【請求項2】窒素酸化物酸化触媒が白金、マニガン、パラジウム、イリジウム、ルテニウム及び銅から選ばれる金属又はその酸化物からなる触媒である請求項1に記載の方法。

【請求項3】炭化水素が軽油である請求項1に記載の方法。

【請求項4】第1段階及び第2段階において、150～450℃の範囲の温度で排ガスを触媒に接触させる請求項1又は2に記載の方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、炭化水素を還元剤として用いる窒素酸化物の接触還元方法に関し、詳しくは、工場、自動車等から排出される排ガスの中に含まれる有害な窒素酸化物を安定して高い除去率にて還元除去することができる窒素酸化物の接触還元方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】従来、排ガス中に含まれる窒素酸化物は、窒素酸化物を酸化した後、アルカリに吸収させる方法や、アンモニア、水素、一酸化炭素、炭化水素等の還元剤を用いて、窒素に変換する方法等によって除去されている。

【0003】しかしながら、前者の方法によれば、生成するアルカリ廃液を処理して、公害の発生を防止する方策が必要である。他方、後者の方法によれば、還元剤としてアンモニアを用いるときは、これが排ガス中の硫黄酸化物と反応して塩類を生成し、その結果、触媒の還元活性が低下する問題がある。また、水素、一酸化炭素、炭化水素等を還元剤として用いる場合でも、これらが低濃度に存在する窒素酸化物よりも高濃度に存在する酸素と反応するので、窒素酸化物を低減するためには、多量の還元剤を必要とするという問題がある。

【0004】このため、最近では、還元剤の不存在下に窒素酸化物を触媒にて直接分解する方法も提案されているが、しかし、従来、知られているそのような触媒は、窒素酸化物の分解活性が低いために、実用に供し難いという問題がある。

【0005】また、炭化水素や含酸素化合物を還元剤として用いる新たな窒素酸化物接触還元用触媒として、H型ゼオライトやCuイオン交換ZSM-5等が提案され

ており、なかでも、H型ZSM-5(SiO<sub>2</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>モル比=3.0～4.0)が最適であるとされている。しかしながら、このようなH型ZSM-5でも、未だ十分な還元活性を有するものはいい難く、特に、ガス中に水分が含まれるとき、ゼオライト構造体中のアルミニウムが脱アルミニウムして、性能が急激に低下するので、一層高い還元活性を有し、更に、ガスが水分を含有する場合にも、すぐれた耐久性を有する窒素酸化物接触還元用触媒が要望されている。

## 【0006】

【発明が解決しようとする課題】そこで、銀又は銀酸化物を無機酸化物に担持させた触媒も提案されているが、そのような触媒は、酸化活性が高く、窒素酸化物に対する選択反応性が低いために、窒素酸化物の除去率が低い。また、触媒が窒素酸化物の分解活性を有する温度域が高いので、排ガス中の窒素酸化物を有効に分解するには、排ガスを予め加熱することが必要であって、実用化には問題がある。更に、銀又は銀酸化物を無機酸化物に担持させた触媒は、硫酸酸化物の共存下での触媒活性の劣化が著しいという問題もある(特開平5-317647号公報)。そのうえ、従来の窒素酸化物接触還元用触媒は、一般に、耐熱性が十分ではなく、用途によらずには、一層の耐熱性が強く要望されている。

【0007】そこで、本発明者は、既に、固体酸担体にアルミニン酸銀を担持させた窒素酸化物接触還元用触媒を提案しており(特願平7-306070号)、この触媒は、上記問題点を改善しているものの、窒素酸化物の還元率の点で、尚、十分とはいえない。

【0008】本発明は、上述したような事情に鑑みてなされたものであって、その目的とするところは、炭化水素を還元剤として用いる窒素酸化物の接触還元方法であって、酸素や硫酸酸化物や水分の共存下においても、多量の還元剤を用いることなく、低温において排ガス中の窒素酸化物を安定して且つ効率よく接触還元することができる窒素酸化物の接触還元方法を提供することにある。

## 【0009】

【課題を解決するための手段】本発明は、排ガスに含まれる窒素酸化物を触媒の存在下に還元剤として炭化水素を用いて接触還元する方法において、第1段階として、排ガスを窒素酸化物酸化触媒(以下、酸化触媒又は第1触媒といふことがある。)に接触させて、排ガスに含まれる一酸化窒素(NO)を二酸化窒素(NO<sub>2</sub>)に酸化し、次いで、このような排ガスに炭化水素を加え、第2段階として、この排ガスをロジウム金属及びロジウム酸化物から選ばれる窒素酸化物還元触媒(以下、還元触媒又は第2触媒といふことがある。)に接触させて、窒素酸化物を窒素に還元することを特徴とする。

## 【0010】

【発明の実施の形態】本発明の方法によれば、第1段階

として、排ガスを窒素酸化物酸化触媒に接触させて、排ガスに含まれる一酸化窒素 ( $\text{NO}$ ) を二酸化窒素 ( $\text{NO}_2$ ) に酸化する。一酸化窒素に比べて、二酸化窒素は、前述する還元触媒による還元反応において、還元剤である炭化水素との選択反応性によりすすぐれないので、第2段階における窒素酸化物の接触還元に先立って、このように、第1段階において、予め一酸化窒素を二酸化窒素に酸化することによって、排ガスに含まれる窒素酸化物の除去率を高めることができる。

【0011】上記酸化触媒、即ち、第1触媒としては、特に、限定されるものではないが、好ましくは、白金、マンガン、パラジウム、イリジウム、ルテニウム及び銅から選ばれる金属又はその酸化物からなる触媒が用いられる。これら金属又はその酸化物は、通常、比表面積の大きい酸化物、例えは、アルミナ、シリカ、シリカーアルミナ、ジルコニア、チタニア、ゼナライト等の固体酸担体に担持されて用いられる。上記金属又はその酸化物をこのような担体に担持させるには、従来より知られているイオン交換法や含浸法等、適宜の方法によればよい。

【0012】上記金属又はその酸化物の担体への担持量、即ち、上記金属又はその酸化物と担体の重量に対する上記金属又はその酸化物の割合は、用いる金属種や触媒が置かれる反応条件にもよるが、また、必ずしも限定されるものではないが、通常、金属換算にて、0.001～1.0重量%の範囲であり、好ましくは、0.1～5重量%の範囲である。上記金属又はその酸化物の担体への担持量が0.001重量%よりも少ないときは、上述したような一酸化窒素を二酸化窒素に酸化する能力が不十分である。しかし、担持量が1.0重量%を越えても、一酸化窒素を二酸化窒素に酸化する能力がそれに見合って増大するものではなく、経済性的観点からも不利である。

【0013】第1段階において、一酸化窒素を含む排ガスをこのような第1触媒に接触させる際の空間速度は、酸化率の観点からは、低ければ低いほどよいが、しかし、一酸化窒素を実用的に効率よく酸化する観点からは、通常、 $50000 \sim 500000 \text{ hr}^{-1}$  の範囲である。

【0014】本発明の方法によれば、このように、排ガスを第1触媒に接触させて、排ガスに含まれる一酸化窒素を二酸化窒素とした後、このような排ガスに還元剤である炭化水素を加え、これを第2触媒に接触させることによって、上記二酸化窒素を効率よく窒素に還元することができ、延いては、排ガス中の窒素酸化物の除去率を高めることができる。

【0015】上記炭化水素からなる還元剤としては、例えは、気体状のものとして、メタン、エタン、プロパン、ブロビレン、ブチレン等の炭化水素ガス、液体状のものとして、ベンゼン、ヘキサン、オクタン、ヘキタノン、ヘンゼン、トルエン、キシレン等の单一成分系の炭

化水素、ガソリン、灯油、軽油、重油等の鉱油系炭化水素等を用いることができる。特に、本発明においては、上記したなかでも、エチレン、ブロビレン、イソブチレン、1-ブテン、2-ブテン等の低級アルケン、ブロパン、ブタノン等の低級アルカン、軽油等が還元剤として好ましく用いられる。これら炭化水素は、単独で用いてもよい、又は必要に応じて2種以上併用してもよい。

【0016】上記還元剤としての炭化水素は、用いる具体的な炭化水素によって異なるが、通常、排ガス中の窒素酸化物（実質的に、一酸化窒素と二酸化窒素とからなる）に対するモル比にて、0.1～2程度の範囲にて用いられる。炭化水素の使用量が窒素酸化物に対するモル比にて、0.1未満であるときは、窒素酸化物に対して十分な還元活性を得ることができず、他方、モル比が2を越えるときは、未反応の炭化水素の排出量が多くなるために、窒素酸化物の接触還元処理の後に、これを回収するための後処理が必要となる。

【0017】尚、排ガス中に存在する燃料等の未燃焼物乃至不完全燃焼生成物、即ち、炭化水素類やパテックュレート類等も還元剤として有効であり、これらも本発明における炭化水素に含まれる。このことから、見方を変えれば、本発明の方法は、排ガス中の炭化水素類やパテックュレート類等を減少させ、又は除去する方法としても有用であるといふことができる。

【0018】第2触媒は、ロジウム金属及びロジウム酸化物から選ばれる。これらは、通常、比表面積の大きい酸化物、例えは、アルミナ、シリカ、シリカーアルミナ、ジルコニア、チタニア、ゼナライト等の固体酸担体に担持されて用いられる。ロジウム金属やロジウム酸化物をこのような担体に担持させるには、第1触媒の場合と同様に、従来より知られているイオン交換法や含浸法等、適宜の方法によればよい。

【0019】本発明においては、担体としては、上記したなかでは、特に、耐熱性にすぐれると共に、担持効果にすぐれるアルミナが好ましく用いられる。アルミナのなかでも、特開平7-171347号公報に記載されているように、アルカリ金属及びアルカリ土類金属の含有量が0.5重量%以下であり、径6.0オングストローム以下の細孔から形成される細孔容積が $0.06 \text{ cm}^3/\text{g}$ 以上、径8.0オングストローム以下の細孔から形成される細孔容積が $0.1 \text{ cm}^3/\text{g}$ 以上であるアルミナが特に好ましく用いられる。このような細孔容積を有する多孔質のアルミナは、還元剤の適度な酸化を促進し、これに担持されているロジウム金属又はロジウム酸化物と協同して、窒素酸化物を効果的に接触還元することができる。

【0020】このように、ロジウム金属又はロジウム酸化物からなる第2触媒は、従来、知られている成形方法によって、それ自体にて、又は担体に担持させた後、ハニカム状、球状等の種々の形状に成形することができる。この成形の際に、成形助剤、成形体補強体、無機繊

誰、有機バイオレーテ等を適宜配合してもよい。また、第2触媒は、予め成形された不活性な基材上にウオッシュ・コート法等によって被覆担持させることもできる。上記基材としては、例えば、コーンフェラメントのような枯土からなるハニカム構造体に担持をせることができる。更に、必要に応じて、従来、知られているその他の触媒の任意の調製法によることもできる。

【0021】ロジウム金属又はロジウム酸化物の担体への担持量は、0.01～1重量%の範囲であることが好ましい。担持量が0.01重量%よりも少ないとときは、窒素酸化物の還元活性が十分でなく、他方、1重量%よりも多いときは、酸化活性が高すぎて、選択性に劣ることとなる。本発明によれば、ロジウム金属又はロジウム酸化物の担体への担持量は、特に、0.05～0.5重量%の範囲が好ましい。

【0022】第2段階において、主として二酸化窒素からなる窒素酸化物と共に炭化水素を含む排ガスをこのような第2触媒に接触させた際の空間速度は、通常、50.00～500.00 hr<sup>-1</sup>の範囲である。第2段階における触媒は、第1段階における触媒に比べて、酸化活性が小さく、窒素酸化物との選択性にすぐれないので、高い脱硝率を得るには、空間速度は小さいことが好ましいが、通常、実用上、上記の範囲の空間速度が採用される。本発明の方法によれば、第1段階及び第2段階における反応温度は、150～450℃の範囲である。必要に応じて、第1段階及び第2段階において、反応温度を変えてよい。

【0023】本発明によれば、上述したように、第1段階において、排ガスを酸化触媒に接触させて、排ガスに含まれる一酸化窒素を二酸化窒素に酸化し、次いで、このような排ガスに炭化水素を加え、第2段階として、この排ガスをロジウム金属及びロジウム酸化物から選ばれる窒素酸化物還元触媒に接触させて、二酸化窒素を窒素に還元するので、低い温度域においても、窒素酸化物を安定して且つ効率よく還元分解することができる。

#### 【0024】

【実施例】以下に各段階のための触媒の調製例と共に実施例を挙げて本発明を説明するが、本発明はこれら実施例により何ら限定されるものではない。

#### 【0025】(1) 第1触媒の調製

##### 調製例1

塩化白金酸(H<sub>2</sub>PtCl<sub>6</sub>·6H<sub>2</sub>O)5.31gをイオン交換水100mLに溶解させた。予め120℃にて24時間乾燥させた平均粒径3mmのγ-アルミナ(住友化学工業(株)製KHA-24)100mLを上記塩化白金酸水溶液に投入し、30分間攪拌して、アルミナの細孔内に塩化白金酸水溶液を十分に含浸させた。

【0026】次いで、γ-アルミナを塩化白金酸水溶液から分離し、表面に付着した過剰の水溶液を除去した後、100℃で12時間乾燥させ、更に、空气中、50.0℃で焼成して、ロジウムをγ-アルミナに0.1重量%の担持量で担持させた触媒(B-1)を得た。

0℃で焼成して、白金をγ-アルミナに1重量%の担持量で担持させた触媒(A-1)を得た。

#### 【0027】調製例2

塩化白金酸に代えて、硝酸マンガ:2.87g用いた以外は、調製例1と同様にして、二酸化マンガンをγ-アルミナに1重量%の担持量で担持させた触媒(A-2)を得た。

#### 【0028】調製例3

塩化白金酸に代えて、塩化パラジウム(PdCl<sub>2</sub>)3.10gを用いた以外は、調製例1と同様にして、パラジウムをγ-アルミナに1重量%の担持量で担持させた触媒(A-3)を得た。

#### 【0029】調製例4

塩化白金酸に代えて、塩化イリジウム(IrCl<sub>4</sub>)17.4gを用いた以外は、調製例1と同様にして、イリジウムをγ-アルミナに5重量%の担持量で担持させた触媒(A-4)を得た。

#### 【0030】調製例5

塩化白金酸に代えて、塩化ルテニウム(RuCl<sub>3</sub>)4.21gを用いた以外は、調製例1と同様にして、ルテニウムをγ-アルミナに1重量%の担持量で担持させた触媒(A-5)を得た。

#### 【0031】調製例6

塩化白金酸に代えて、硝酸銅(Cu(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>·3H<sub>2</sub>O)2.42gを用いた以外は、調製例1と同様にして、酸化第二銅をγ-アルミナに1重量%の担持量で担持させた触媒(A-6)を得た。

#### 【0032】(2) 第2触媒の調製

##### 調製例7

硝酸ロジウム(Rh(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>·2H<sub>2</sub>O)0.64gをイオン交換水100mLに溶解させた。予め120℃で24時間乾燥させた平均粒径3mmのγ-アルミナ(住友化学工業(株)製KHA-24)100mLを上記硝酸ロジウム水溶液に投入し、30分間攪拌して、アルミナの細孔内に硝酸ロジウム水溶液を十分に含浸させた。

【0033】次いで、γ-アルミナを硝酸ロジウム水溶液から分離し、表面に付着した過剰の水溶液を除去した後、100℃で12時間乾燥させ、更に、空气中、50.0℃で焼成して、ロジウムをγ-アルミナに0.1重量%の担持量で担持させた触媒(B-1)を得た。

#### 【0034】調製例8

調製例7において、硝酸ロジウム0.06gを用いた以外は、調製例8と同様にして、ロジウムをγ-アルミナに0.01重量%の担持量で担持させた触媒(B-2)を得た。

#### 【0035】調製例9

調製例7において、硝酸ロジウム3.20gを用いた以外は、調製例8と同様にして、ロジウムをγ-アルミナに0.5重量%の担持量で担持させた触媒(B-3)を得た。

た。

### 【0036】調製例10

調製例7において、硝酸ロジウム6.40 gを用いた以外は、調製例8と同様にして、ロジウムを $\gamma$ -アルミニナに1.0重量%の担持量で担持させた触媒(B-4)を得た。

### 【0037】実施例1~11(評価試験)

下記の組成を有するガスを第1段階にて第1触媒(A-1~6)にて処理した後、このガスに還元剤(炭化水素)を加え、第2段階にて第2触媒(B-1~4)にて処理して、窒素酸化物含有ガスの窒素酸化物接触還元を行ない、第1段階において、一酸化窒素の二酸化窒素への転化率と、第2段階の後の窒素酸化物の除去率とをそれぞれケミカルルミネッセンス法にて求めた。結果を表1及び表2に示す。

### 【0038】(試験条件)

#### (1) ガス組成(第1段階)

NO	500 ppm
O <sub>2</sub>	10容量%
水	6容量%
窒素	残部

#### (2) ガス組成(第2段階)

第1段階で処理したガスに還元剤(炭化水素)を500\*

\* ppm加えた。還元剤として軽油を用いた場合、軽油はC換算でC1.2とした。)

#### (3) 空間速度

第1段階 50000、100000又は200000 (hr<sup>-1</sup>)

第2段階 20000又は50000 (hr<sup>-1</sup>)

(4) 反応温度 250°C、300°C、350°C、400°C又は450°C

### 【0039】比較例1~4(評価試験)

10 窒素酸化物含有ガスを第1段階(窒素酸化物含有ガスに還元剤を加えた後、酸化触媒でのみ処理する。)か、又は第2段階(窒素酸化物含有ガスに還元剤を加えた後、還元触媒でのみ処理する。)のいずれか一方のみで処理した以外は、実施例と同様にして、窒素酸化物含有ガスの窒素酸化物接触還元を行ない、窒素酸化物含有ガスを第1段階のみで処理した場合には、一酸化窒素への二酸化窒素への転化率を、また、窒素酸化物含有ガスを第2段階のみで処理した場合には、窒素酸化物の除去率をそれぞれケミカルルミネッセンス法にて求めた。結果を表20 1及び表2に示す。

### 【0040】

【表1】

	還元剤	触媒	空間速度 (hr <sup>-1</sup> )	一酸化窒素の二酸化窒素への転化率(%) / NO <sub>x</sub> 除去率(%)				
				250°C	300°C	350°C	400°C	450°C
実施例1	軽油	A-1	100000	37.4/	52.2/	78.3/	68.7/	50.8/
		B-1	50000	14.8	27.2	48.3	45.9	31.4
実施例2	軽油	A-1	200000	29.2/	44.2/	65.9/	60.4/	46.3/
		B-1	20000	10.6	25.8	36.8	33.1	22.8
実施例3	軽油	A-1	50000	45.3/	68.8/	83.6/	74.1/	56.1/
		B-1	50000	18.3	34.0	51.2	58.2	38.5
実施例4	軽油	A-1	100000	37.4/	52.2/	78.3/	68.7/	50.8/
		B-3	50000	11.9	23.6	37.0	41.1	44.2
実施例5	軽油	A-1	100000	37.4/	52.2/	78.3/	68.7/	50.8/
		B-4	50000	17.5	31.7	48.4	42.8	28.6
実施例6	軽油	A-2	100000	37.4/	52.2/	78.3/	68.7/	50.8/
		B-1	50000	20.0	34.3	44.6	37.0	25.2
実施例7	軽油	A-3	200000	37.2/	55.2/	64.6/	62.5/	45.0/
		B-1	50000	10.7	21.1	37.6	35.7	28.9

(注) 1) 触媒の欄において、上段は第1触媒、下段は第2触媒を表わす。

2) 空間速度の欄において、上段は第1段階、下段は第2段階を表わす。

### 【0041】

【表2】

	還元剤	触媒	空間速度 (hr <sup>-1</sup> )	一酸化窒素の二酸化窒素への転化率(%) /NO <sub>x</sub> 除去率(%)				
				250°C	300°C	350°C	400°C	450°C
比較例1	軽油	B-1	50000	5.8	13.2	20.5	24.5	13.9
比較例2	軽油	A-1	50000	9.9	4.6	0.0	0.0	0.0
実施例8	プロピレン	A-4	200000	42.6/	73.8/	75.1/	62.3/	48.5/
		B-1	50000	33.1	52.0	55.3	48.5	23.4
実施例9	メタン	A-3	200000	32.5/	40.4/	34.6/	22.3/	9.1/
		B-1	50000	9.3	22.7	34.4	37.0	30.5
実施例10	プロピレン	A-5	200000	20.7/	43.1/	43.6/	33.3/	25.6/
		B-1	50000	15.9	20.9	48.4	44.7	37.2
実施例11	プロピレン	A-6	200000	18.1/	36.8/	44.2/	38.2/	28.9/
		B-1	50000	12.3	29.5	39.6	37.1	26.4
比較例3	メタン	B-1	20000	0.0	0.0	4.0	17.0	20.0
比較例4	プロピレン	B-1	20000	13.7	18.4	27.2	25.2	12.9

(注) 1) 触媒の欄において、上段は第1触媒、下段は第2触媒を表わす。

2) 空間速度の欄において、上段は第1段階、下段は第2段階を表わす。

#### 【0042】

【発明の効果】表1及び表2に示す結果から明らかにように、本発明の方法によれば、酸素や硫黄酸化物や水分

の共存下においても、多量の還元剤を用いることなく、低い温度域において、排ガス中の窒素酸化物を安定して且つ効率よく接触還元することができる。

フロントページの続き

(51) Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	府内整理番号	F I	技術表示箇所
B 0 1 J 23/46	3 0 1		B 0 1 J 23/46	3 1 1 A
	3 1 1		23/72	A
23/72			B 0 1 D 53/36	1 0 2 B
				1 0 2 G

(72) 発明者 田畠 啓一

大阪府堺市戎島町5丁1番地 堀化学工業  
株式会社中央研究所内